



University of Groningen

Radiation damage in NaCl. Small particles

Weerkamp, Johannes Robertus Willibrord; Groote, Jacob Cornelis

IMPORTANT NOTE: You are advised to consult the publisher's version (publisher's PDF) if you wish to cite from it. Please check the document version below.

Document Version

Publisher's PDF, also known as Version of record

Publication date:

1990

[Link to publication in University of Groningen/UMCG research database](#)

Citation for published version (APA):

Weerkamp, J. R. W., & Groote, J. C. (1990). Radiation damage in NaCl. Small particles. s.n.

Copyright

Other than for strictly personal use, it is not permitted to download or to forward/distribute the text or part of it without the consent of the author(s) and/or copyright holder(s), unless the work is under an open content license (like Creative Commons).

Take-down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us providing details, and we will remove access to the work immediately and investigate your claim.

Downloaded from the University of Groningen/UMCG research database (Pure): <http://www.rug.nl/research/portal>. For technical reasons the number of authors shown on this cover page is limited to 10 maximum.

SAMENVATTING

In de afgelopen jaren is de milieuproblematiek een steeds belangrijker begrip geworden in onze samenleving. Naast o.a. de zure regen en het broeikaseffect is het afvalprobleem één van de grootste problemen van deze tijd aan het worden. Radioactief afval, vaak juist ontstaan als gevolg van een streven naar een beter leefklimaat, is een eindprodukt dat meestal nauwelijks geschikt is voor hergebruik of verdere verwerking. Opslag van dit afval lijkt voorlopig één van de weinige mogelijkheden. In Nederland komen daartoe bijvoorbeeld stabiele zoutformaties in aanmerking. De Nederlandse regering heeft daarom besloten tot het opstarten van een groot onderzoeksprogramma, Integraal Landelijk Onderzoek Nucleair Afval (ILONA), waaronder een deelprogramma resulteert, dat OPslag te LAnd (OPLA) genoemd wordt. Aan dit laatste research programma hebben wij een bijdrage geleverd. De vraag die wij moesten beantwoorden, luidde: "Wat is de invloed van ioniserende straling op zout?"

Als zout wordt blootgesteld aan ioniserende straling verandert zijn inwendige structuur. Zuiver zout bestaat uit natrium en chloride ionen die op zeer regelmatige wijze zijn gerangschikt in een rooster. Door de wisselwerking van de ioniserende straling met het zout worden vooral de chloride ionen van hun plaats geschoten en vormen zich groepjes van natrium- en chlooratomen. Natriumatomen samen vormen natrium metaal. De chlooratomen vormen mogelijk chloorgas. Hoe groter deze groepjes groeien of hoe meer groepjes zich vormen, des te groter is de schade in het kristal. Wanneer, om welke reden dan ook, de verschillende soorten klusters weer in contact met elkaar komen, komt er heel veel energie vrij. Wij hebben in dit proefschrift geprobeerd antwoord te geven op twee vragen, die betrekking hebben op het proces van schadevorming in zout.

1. Hoeveel natrium en chloor kunnen we maximaal d.m.v ioniserende straling van elkaar scheiden? Hieraan gekoppeld is de vraag hoeveel opgeslagen energie bevindt er zich in het kristal?
2. Hoe zien die kleine groepjes atomen en dan met name de natriumdeeltjes, er nu precies uit? Wat is de vorm, de grootte en het karakter van deze deeltjes?

Hoeveel natrium en chloride ionen er van hun plaats worden geschoten is heel sterk afhankelijk van de hoeveelheid straling (de dosis), van de temperatuur tijdens de bestraling en van de snelheid waarmee een bepaalde dosis wordt opgebouwd. Tevens is het heel belangrijk of, en zo ja welke, andere atomen – onzuiverheden – zich in het zout bevinden. In natuurlijk steenzout bevinden zich zeer vele verschillende onzuiverheidsionen.

Om dit te onderzoeken, hebben we vele zelf bereide zoutkristallen bestraald, waarbij we ten tijde van de bestraling alle parameters die van belang zijn voor het schadevormingsproces hebben gecontroleerd. Daarna hebben we van al deze kristallen gemeten hoeveel energie (= schade) erin is opgeslagen. We hebben dit gedaan door het kristal te verwarmen. Bij een bepaalde temperatuur, ongeveer 300 °C, komt deze energie vrij en warmt het kristal zichzelf op. De maximale opgeslagen energie in een sample, die we hebben gemeten, bedroeg ongeveer 1000 Joule per gram zout. Dit was een zoutkristal met daarin kalium als onzuiverheid. Het bleek, dat sommige zwaar bestraalde kristallen explodeerden tijdens de meting of zelfs tijdens de bestraling.

De hoeveelheid schade hangt sterk af van de temperatuur tijdens de bestraling. Het blijkt uit onze metingen, dat in verontreinigde samples het temperatuursgebied, waarin schade optreedt, sterk is vergroot ten opzichte van dit temperatuursgebied voor zuivere zoutkristallen. Om vast te stellen hoeveel atomen er nu van hun plaats zijn geraakt, moeten we weten hoeveel energie er vrij komt wanneer één natrium- en één chlooratoom met elkaar reageren. Over deze zogenaamde rekombinatie energie bestaat onenigheid in de literatuur. Lange tijd waren wij van oordeel dat de energie per defekt paar 4.25 eV bedroeg. Later hebben we zelf op twee verschillende manieren deze rekombinatie energie bepaald. Ten eerste hebben we een vergelijking gemaakt tussen het aantal atomen dat aanwezig is in de vorm van defekten, gemeten met een optische techniek, en de totale opgeslagen energie. Daarnaast hebben we de warmte, die nodig is om de kleine natrium metaal deeltjes te smelten, vergeleken met de totale opgeslagen energie. Het blijkt dat er ongeveer 8 eV energie vrij komt bij de reactie tussen één natriumatoom en één chlooratoom. Dit betekent dat in het sample met het door ons bepaalde maximum van 1000 J/g opgeslagen energie, er 8% van het totaal aantal atomen zich niet op zijn normale positie bevindt.

Een probleem is het vertalen van deze laboratorium experimenten naar een reële opbergsituatie. Hoe gaat het er precies in een zoutkoepel aan toe. Het afval ligt honderden jaren onder de grond, maar onze experimenten moesten in drie jaar tijd worden verricht. Daarom hebben we twee modellen gemaakt die zijn gebaseerd op een reeds bestaand model, het zogenaamde Jain-Lidiard model. Hiermee proberen we te voorspellen wat er gebeurt als de bestraling in een veel lager tempo plaatsvindt. De uitkomsten van deze modellen moeten vergeleken worden met onze eigen laboratorium experimenten.

Het blijkt, dat bij een extrapolatie op basis van het Jain-Lidiard model, naar de situatie zoals die zich voordoet in een echte mijn, de hoeveelheid schade nog aanzienlijk toeneemt. Enige tientallen procenten schade zijn dan mogelijk. Bij een plotseling vrijkomen van de hieraan gekoppelde opgeslagen energie betekent dit mogelijk een temperatuurstijging van het omringende zout van 1500 °C. Daardoor kunnen thermische schokgolven ontstaan met als mogelijk gevolg behoorlijke scheuren. Een preciese voorspelling is echter met de huidige kennis nog niet te maken, er is hier zeer zeker aanvullend onderzoek nodig. Verder is aanvullend onderzoek nodig om na te gaan in hoeverre de genoemde gevolgen te beperken zijn.

De tweede vraag betrof vooral de vorm, waarin de kleine groepjes natriumatomen zich bevinden. Het is belangrijk om te weten hoe deze deeltjes eruit zien, omdat we dan meer kunnen zeggen over hoe ze gevormd worden en hoe ze zich tijdens de bestraling zullen gedragen. De deeltjes zijn zo miniem, kleiner dan 0.00001 millimeter, dat het niet mogelijk is om de deeltjes met een lichtmikroskoop te bekijken. Soms bestaan de deeltjes slechts uit een paar atomen. Dit is voor natuurkundigen interessant. De deeltjes zijn groter dan een los molecuul of atoom maar ze hebben nog niet die eigenschappen, die ze zouden hebben als er honderdduizenden bij elkaar zouden zijn en deze deeltjes een metaal zouden vormen. De atomen die aan de rand van het deeltje zitten bepalen voor een gedeelte de eigenschappen van het deeltje. Bij kleine deeltjes bevinden zich er relatief meer atomen aan de rand dan bij grote deeltjes.

Wij hebben deze deeltjes met een aantal verschillende technieken onderzocht. Eén van de gebruikte methoden is het smelten van de kleine natriumdeeltjes.

Natrium smelt bij ongeveer 98°C en zout smelt bij 800°C . We kunnen dus de kleine natriumdeeltjes, die zich binnen in het zout bevinden, smelten. Het blijkt, dat de smelttemperatuur voor verschillende soorten van deeltjes varieert. Sommige deeltjes smelten bij temperaturen lager dan 98°C . Andere deeltjes hebben een hogere smelttemperatuur. Op deze manier kunnen wij iets zeggen over de vorm en de grootte van de deeltjes. Zeer kleine deeltjes, die bestaan uit enkele honderden tot enkele duizenden atomen, smelten bij temperaturen, die hoger liggen dan de smelttemperatuur van natrium metaal.

Vroeger werd er vanuit gegaan dat de kleine natriumdeeltjes mooi rond en kompakt van vorm waren. Onze experimenten tonen echter aan dat de deeltjes een veel rafeliger, open structuur hebben; de deeltjes hebben, vooral bij hoge schadeperscentages, een fraktaal karakter. Dit maakt het interessant om deze deeltjes nader te gaan onderzoeken.

We hebben geprobeerd de deeltjes zichtbaar te maken in een elektronen mikroskoop. Met een dergelijk instrument kun je nog kleinere deeltjes zichtbaar maken dan in een lichtmikroskoop. Het is ons echter niet volledig gelukt om de deeltjes zelf zichtbaar te maken. Wel de reactieproducten van het natriummetaal met het water uit de atmosfeer. De echte maat en vorm van de deeltjes gaat dan echter verloren. Ook dit is een facet van ons onderzoek, waaraan nog veel meer gewerkt kan worden.

Graag willen v
hebben bijgedr
willen we onze
tomeloze inzet
De schermutseli
werden tot in
gaf ons niet de

We hebben met
gewaardeerde be
Hans Seinen, on
ei al op was.
proefschrift in
hebben de stud
Thomas Hantke

Het zout in on
gewaardeerd als
fotografie. Een
Wesseling, heef
voldoende krista

Grote bewonder
medewerkers va
met werk, voor
samen met zij
versterker gebo
Postma heeft ze
vergiet mag vo
dat alle gaatjes
wij het nog noo

Met onze kolleg
Joeke, Benno, M